

PCT/JP2004/013385

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

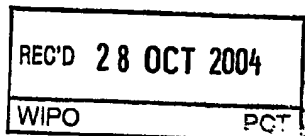
08.09.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2003年 9月24日

出 願 番 号
Application Number: 特願2003-331515
[ST. 10/C]: [JP2003-331515]



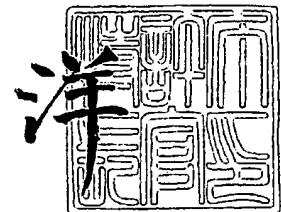
出 願 人
Applicant(s): 富士写真フイルム株式会社

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年10月15日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小 川



BEST AVAILABLE COPY

出証番号 出証特2004-3092933

【書類名】 特許願
【整理番号】 31-3675
【提出日】 平成15年 9月24日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 H05B 33/14
【発明者】
 【住所又は居所】 神奈川県南足柄市中沼 2 1 0 番地 富士写真フイルム株式会社内
 【氏名】 新居 一巳
【発明者】
 【住所又は居所】 神奈川県南足柄市中沼 2 1 0 番地 富士写真フイルム株式会社内
 【氏名】 五十嵐 達也
【発明者】
 【住所又は居所】 神奈川県南足柄市中沼 2 1 0 番地 富士写真フイルム株式会社内
 【氏名】 渡辺 幸輔
【発明者】
 【住所又は居所】 神奈川県南足柄市中沼 2 1 0 番地 富士写真フイルム株式会社内
 【氏名】 伊勢 俊大
【発明者】
 【住所又は居所】 神奈川県南足柄市中沼 2 1 0 番地 富士写真フイルム株式会社内
 【氏名】 岡田 久
【特許出願人】
 【識別番号】 000005201
 【氏名又は名称】 富士写真フイルム株式会社
【代理人】
 【識別番号】 100105647
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 小栗 昌平
 【電話番号】 03-5561-3990
【選任した代理人】
 【識別番号】 100105474
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 本多 弘徳
 【電話番号】 03-5561-3990
【選任した代理人】
 【識別番号】 100108589
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 市川 利光
 【電話番号】 03-5561-3990
【選任した代理人】
 【識別番号】 100115107
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 高松 猛
 【電話番号】 03-5561-3990
【選任した代理人】
 【識別番号】 100090343
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 栗宇 百合子
 【電話番号】 03-5561-3990

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 092740

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 特許請求の範囲 1

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0003489

【書類名】特許請求の範囲

【請求項 1】

一对の電極間に、発光層、ホール輸送層、及び電子輸送層を有する有機電界発光素子であって、該発光層中に少なくとも 2 種のホスト材料と、少なくとも 1 種の赤色燐光発光材料とを含有し、該ホール輸送層中のホール輸送材料のイオン化ポテンシャルは該発光層中の 2 種の該ホスト材料のイオン化ポテンシャルより小さいことを特徴とする有機電界発光素子。

【請求項 2】

該発光層中の少なくとも一種の該赤色燐光発光材料の最低励起三重項エネルギー準位が 167.6 kJ/mol (40 Kcal/mol) 以上 230.5 kJ/mol (55 Kcal/mol) 以下であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 3】

該発光層中のすべてのホスト材料が非金属錯体化合物であることを特徴とする請求項 1 又は請求項 2 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 4】

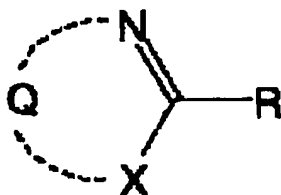
該発光層中のホスト材料の少なくとも一方がヘテロ原子を 2 つ以上含有するヘテロ環骨格を有する化合物であることを特徴とする請求項 3 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 5】

ヘテロ原子を 2 つ以上含有するヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式 (I) で表されることを特徴とする請求項 4 に記載の有機電界発光素子。

【化 1】

一般式 (I)



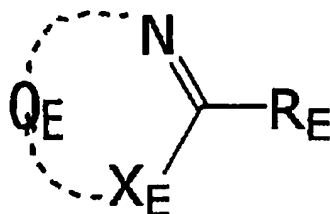
(式中、R は水素原子または置換基を表す。X は $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $=\text{N}-$ または $=\text{N}-\text{Ra}$ (Ra は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)) を表す。Q は N および X と結合して縮合ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。)

【請求項 6】

該有機電界発光素子が電子輸送層を含有し、該電子輸送層が一般式 (E1) で表される化合物を含有することを特徴とする請求項 1 ～ 請求項 5 のいずれか一項にに記載の有機電界発光素子。

【化2】

一般式 (E 1)



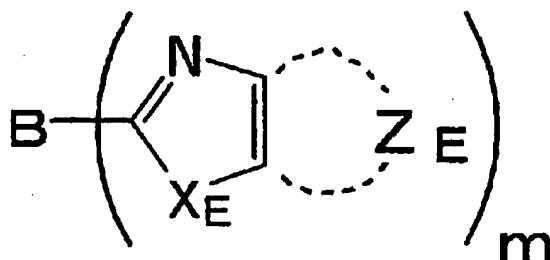
(式中、 R_E は水素原子または置換基を表す。 X_E は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $=N-$ または $=N-R_a$ (R_a は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)) を表す。 Q_E は N および X_E と結合してヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。)

【請求項 7】

該電子輸送層が一般式 (E-I I) で表される化合物を含有することを特徴とする請求項 6 記載の有機電界発光素子。

【化3】

一般式 (E-I I)



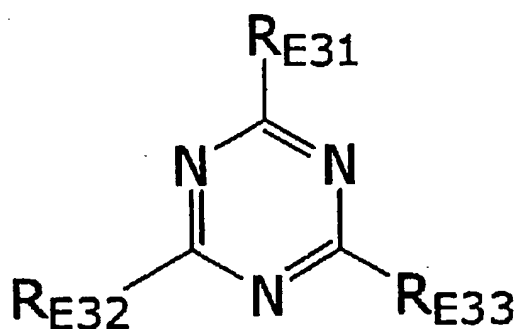
(式中、 X_E は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $=N-$ または $=N-R_a$ (R_a は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)) を表す。 Z_E は芳香族環を形成するのに必要な原子群を表す。 B は連結基を表す。 m は 2 以上の整数を表す)

【請求項 8】

該電子輸送層が一般式 (E-I I I) で表される化合物を含有することを特徴とする請求項 6 記載の有機電界発光素子。

【化 4】

一般式 (E-III)



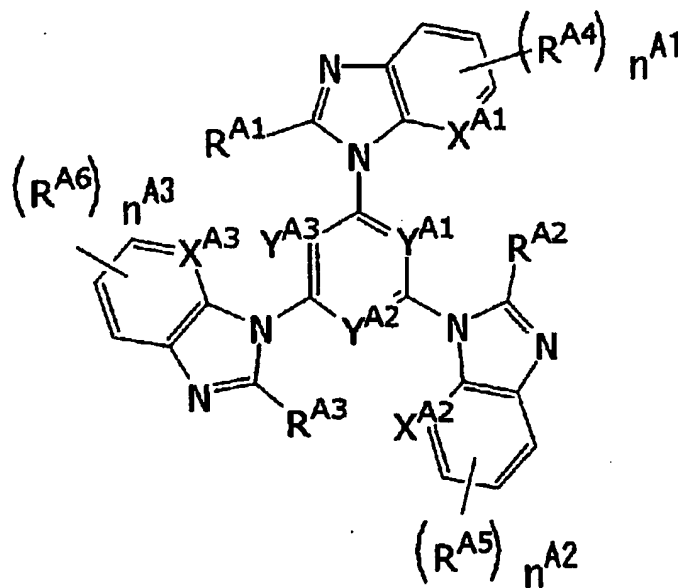
(式中、 R_{E31} 、 R_{E32} および R_{E33} はそれぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)

【請求項 9】

該電子輸送層が一般式 (E-IV) で表される化合物を含有することを特徴とする請求項 6 記載の有機電界発光素子。

【化 5】

一般式 (E-IV)



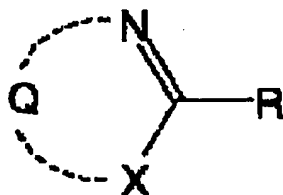
(式中、 R^{A1} 、 R^{A2} および R^{A3} は、それぞれ水素原子または脂肪族炭化水素基を表す。 R^{A4} 、 R^{A5} および R^{A6} は、それぞれ置換基を表す。 n^{A1} 、 n^{A2} および n^{A3} は、それぞれ0～3の整数を表す。 X^{A1} 、 X^{A2} および X^{A3} は、それぞれ窒素原子または $C-R^X$ (R^X は水素原子または置換基を表す。)を表す。 Y^{A1} 、 Y^{A2} および Y^{A3} は、それぞれ窒素原子または $C-R^{YX}$ (R^{YX} は水素原子または置換基を表す。)を表す。)

【請求項10】

一对の電極間に発光層と、発光層の隣接層にホール輸送層と電子輸送層を有する有機電界発光素子において、該発光層中に少なくとも2つのホスト材料と、少なくとも1つの赤色燐光発光材料を含有し、発光層中の少なくとも一つのホスト材料が下記一般式(I)で表される化合物であることを特徴とする有機電界発光素子。

【化6】

一般式 (I)



(式中、Rは水素原子または置換基を表す。Xは-O-、-S-、=N-または=N-Ra (Raは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。))を表す。QはNおよびXと結合して縮合ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。)

【書類名】明細書

【発明の名称】有機電界発光素子

【技術分野】

【0001】

本発明は、電気エネルギーを光に変換して発光できる有機電界発光素子に関する。

【背景技術】

【0002】

有機電界発光 (EL) 素子は、低電圧で高輝度の発光を得ることができるため、有望な表示素子として注目されている。有機 EL 素子の高耐久化の研究が行われており、ホール注入材料、ホール輸送材料、発光材料、ホスト材料、電子輸送材料、電子注入材料について種々の構造が検討されている。

【0003】

高耐久化を検討したものとして、一重項発光素子では窒素含有配位子からなる金属錯体や窒素含有ヘテロ環化合物や Si 含有環化合物である電子輸送性化合物とアントリル化合物をホストとして混合した例が開示されている (例えば特許文献 1)。電子とホールの両方を輸送し得る非極性の有機化合物と該成分より高極性の有機化合物をホストとして混合した例が開示されている (例えば特許文献 2)。また、高効率発光可能な三重項発光素子でホストを混合した例も開示されている (例えば、特許文献 3、特許文献 4、特許文献 5、特許文献 6)。しかしながら、効率、色純度、耐久性の点で問題があり、改良が望まれていた。また、特許文献 4、5 には混合ホストを用いた三重項赤色発光素子が開示されているが、その製造法が煩雑であり、素子の製造適性は低い。

【特許文献 1】特開 2001-284050 号公報

【特許文献 2】欧州特許出願公開第 1221473 号明細書

【特許文献 3】特開 2002-313583 号公報

【特許文献 4】特開 2002-313584 号公報

【特許文献 5】特開 2002-313585 号公報

【特許文献 6】特開 2002-319492 号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

本発明の目的は、発光特性、及び耐久性が良好であり、さらに製造適性に優れる有機電界発光素子の提供にある。

【課題を解決するための手段】

【0005】

本発明者らは、上記課題について検討の結果、下記手段により本発明に到達したものである。

1. 一对の電極間に、発光層、ホール輸送層、及び電子輸送層を有する有機電界発光素子において、該発光層中に少なくとも 2 つのホスト材料と、少なくとも 1 つの赤色燐光発光材料を含有し、該ホール輸送層中のホール輸送材料のイオン化ポテンシャルが該発光層中の 2 つの該ホスト材料のイオン化ポテンシャルより小さいことを特徴とする有機電界発光素子。

2. 該発光層中の少なくとも少なくとも一種の該赤色燐光発光材料の最低励起三重項エネルギー準位が 167.6 kJ/mol (40 Kcal/mol) 以上 230.5 kJ/mol (55 Kcal/mol) 以下であることを特徴とする上記 1. に記載の有機電界発光素子。

3. 該発光層中のすべての該ホスト材料が非金属錯体化合物であることを特徴とする上記 1. 又は上記 2. に記載の有機電界発光素子。

4. 該発光層中のホスト材料の膜状態での最低励起三重項エネルギー準位が該赤色燐光性化合物の最低励起三重項エネルギー準位より大きいことを特徴とする上記 1. ～上記 3. のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

【0006】

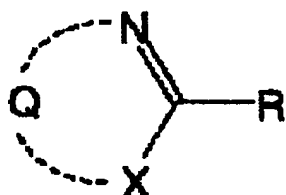
5. 該発光層中のホスト材料の少なくとも一方がヘテロ原子を2つ以上含有するヘテロ環骨格を有する化合物からなることを特徴とする上記3. に記載の有機電界発光素子。

6. ヘテロ原子を2つ以上含有するヘテロ環骨格を有する化合物からなるホスト材料が下記一般式(I)で表されることを特徴とする上記5. に記載の有機電界発光素子。

【0007】

【化1】

一般式(I)



【0008】

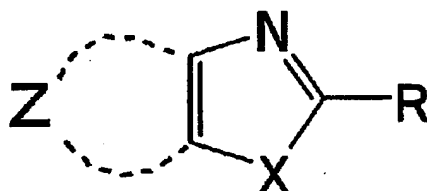
(式中、Rは水素原子または置換基を表す。Xは-O-、-S-、=N-または=N-Ra (Raは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)を表す。QはNおよびXと結合して縮合ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。)

7. ヘテロ原子を2つ以上含有するヘテロ環骨格を有する化合物からなるホスト材料が一般式(H-I)で表される化合物を含有することを特徴とする上記6. に記載の有機電界発光素子。

【0009】

【化2】

一般式(H-I)



【0010】

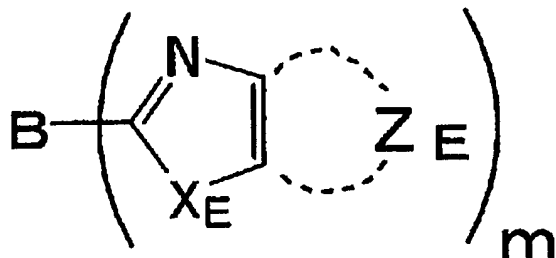
(式中、Rは水素原子または置換基を表す。Xは-O-、-S-、=N-または=N-Ra (Raは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)を表す。Zは芳香族環を形成するのに必要な原子群を表す。)

8. ヘテロ原子を2つ以上含有するヘテロ環骨格を有する化合物からなるホスト材料が一般式(H-II)で表される化合物を含有することを特徴とする上記7. に記載の有機電界発光素子。

【0011】

【化3】

一般式 (H-III)



【0012】

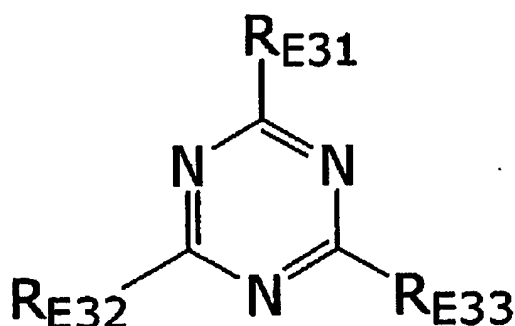
(式中、 X_E は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $=N-$ または $=N-R_a$ (R_a は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。) を表す。 Z_E は芳香族環を形成するに必要な原子群を表す。 B は連結基を表す。 m は 2 以上の整数を表す)

9. ヘテロ原子を 2 つ以上含有するヘテロ環骨格を有する化合物からなるホスト材料が一般式 (H-III) で表される化合物を含有することを特徴とする上記 6. に記載の有機電界発光素子。

【0013】

【化4】

一般式 (H-III)



【0014】

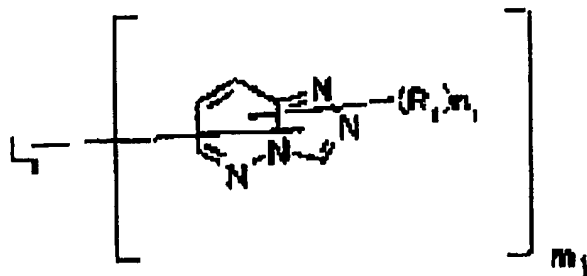
(式中、 R_{E31} 、 R_{E32} および R_{E33} はそれぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)

10. ヘテロ原子を 2 つ以上含有するヘテロ環骨格を有する化合物からなるホスト材料が下記一般式 (H-IV) で表される化合物を含有することを特徴とする上記 6. に記載の有機電界発光素子。

一般式 (H-IV)

【0015】

【化5】



【0016】

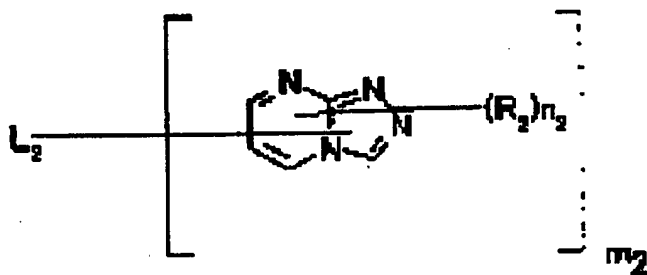
(式中、 R_1 は置換基を表し、 L_1 は連結基を表す。 n_1 は0～4の整数を表し、 m_1 は2以上の整数を表す。)

11. ヘテロ原子を2つ以上含有するヘテロ環骨格を有する化合物からなるホスト材料が下記一般式(H-V)で表される化合物を含有することを特徴とする上記6.に記載の有機電界発光素子。

一般式(H-V)

【0017】

【化6】



【0018】

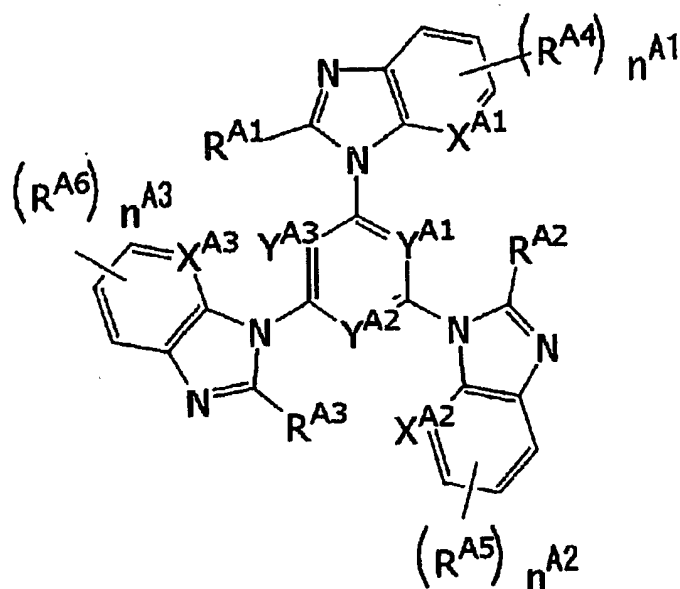
(式中、 R_2 は置換基を表し、 L_2 は連結基を表す。 n_2 は0～4の整数を表し、 m_2 は2以上の整数を表す。)

12. ヘテロ原子を2つ以上含有するヘテロ環骨格を有する化合物からなるホスト材料が一般式(H-VI)で表される化合物を含有することを特徴とする上記7.に記載の有機電界発光素子。

一般式(H-VI)

【0019】

【化7】



【0020】

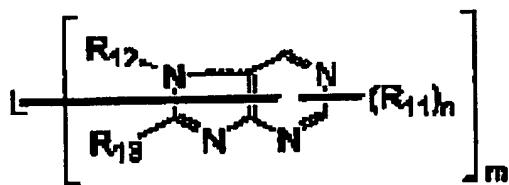
(式中、 R^{A1} 、 R^{A2} 及び R^{A3} は、それぞれ水素原子または脂肪族炭化水素基を表す。 R^{A4} 、 R^{A5} および R^{A6} は、それぞれ置換基を表す。 n^{A1} 、 n^{A2} および n^{A3} は、それぞれ 0～3 の整数を表す。 X^{A1} 、 X^{A2} および X^{A3} は、それぞれ窒素原子または $C-R^X$ (R^X は水素原子または置換基を表す。) を表す。 Y^{A1} 、 Y^{A2} および Y^{A3} は、それぞれ窒素原子または $C-R^{YX}$ (R^{YX} は水素原子または置換基を表す。) を表す。)

13. ヘテロ原子を2つ以上含有するヘテロ環骨格を有する化合物からなるホスト材料が下記一般式 (H-VII) で表される化合物を含有することを特徴とする上記7.に記載の有機電界発光素子。

一般式 (H-VII)

【0021】

【化8】



【0022】

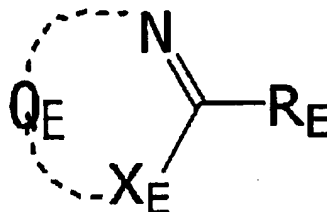
(式中、 R_{11} は置換基を表し、 R_{12} は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基又はヘテロ環基を表し、 R_{13} は水素原子又は置換基を表し、 n は 0～2 の整数を表し、 L は単結合又は連結基を表し、 m は 2 以上の整数を表す。)

14. 該有機電界発光素子が電子輸送層を含有し、該電子輸送層が一般式 (E1) で表される化合物を含有することを特徴とする上記1.～上記13.のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

【0023】

【化9】

一般式 (E1)



【0024】

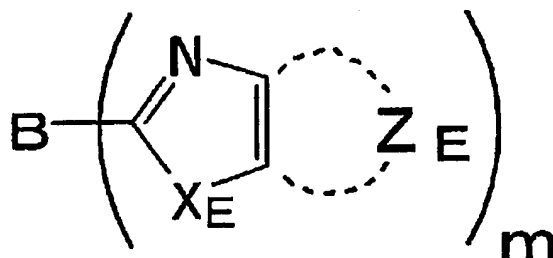
(式中、 R_E は水素原子または置換基を表す。 X_E は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $=N-$ または $=N-R_a$ (R_a は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)) を表す。 Q_E はNおよび X_E と結合してヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。)

15. 該電子輸送層が一般式 (E-I I) で表される化合物を含有することを特徴とする上記14. に記載の有機電界発光素子。

【0025】

【化10】

一般式 (E-I I)



【0026】

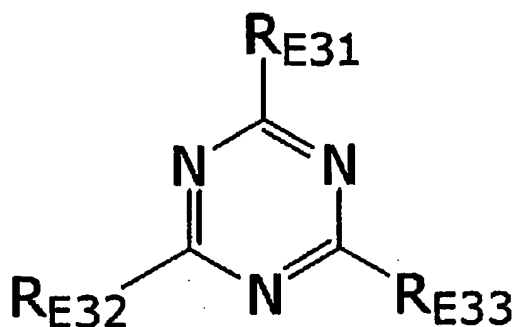
(式中、 X_E は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $=N-$ または $=N-R_a$ (R_a は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)) を表す。 Z_E は芳香族環を形成するのに必要な原子群を表す。 B は連結基を表す。 m は2以上の整数を表す)

16. 該電子輸送層が一般式 (E-I I I) で表される化合物を含有することを特徴とする上記14. に記載の有機電界発光素子。

【0027】

【化11】

一般式 (E-III)



【0028】

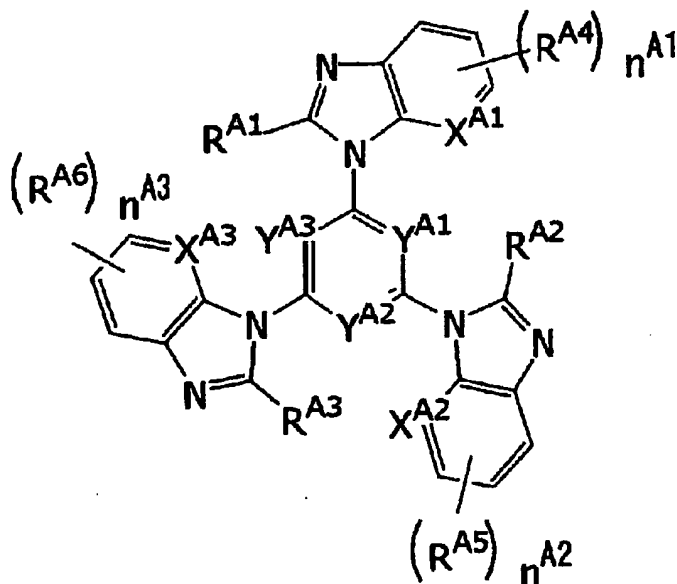
(式中、 R_{E31} 、 R_{E32} 、 R_{E33} は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)

17. 該電子輸送層が一般式 (E-IV) で表される化合物を含有することを特徴とする上記14. に記載の有機電界発光素子。

一般式 (E-IV)

【0029】

【化12】



【0030】

(式中、 R^{A1} 、 R^{A2} および R^{A3} は、それぞれ水素原子または脂肪族炭化水素基を表す。 R^{A4} 、 R^{A5} および R^{A6} は、それぞれ置換基を表す。 n^{A1} 、 n^{A2} および n^{A3} は、それぞれ0～3の整数を表す。 X^{A1} 、 X^{A2} および X^{A3} は、それぞれ窒素原子またはC- R^X (R^X は水素原子または置換基を表す。)を表す。 Y^{A1} 、 Y^{A2} および Y^{A3} は、それぞれ窒素原子ま

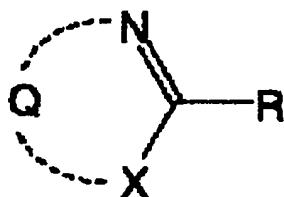
たは $C-R^{YX}$ (R^{YX} は水素原子または置換基を表す。)を表す。)

18. 一对の電極間に発光層と、該発光層の隣接層にホール輸送層と電子輸送層を有する有機電界発光素子において、該発光層中に少なくとも2つのホスト材料と、少なくとも1つの赤色燐光発光材料を含有し、発光層中の少なくとも一つのホスト材料が下記一般式(I)で表される化合物であることを特徴とする有機電界発光素子。

【0031】

【化13】

一般式(I)



【0032】

(式中、Rは水素原子または置換基を表す。Xは $-O-$ 、 $-S-$ 、 $=N-$ または $=N-Ra$ (Ra は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。))を表す。QはNおよびXと結合して縮合ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。)

【発明の効果】

【0033】

本発明の発光素子は発光特性(色純度や外部量子効率(ϕ_{EL}))、耐久性(駆動電圧の経時的上昇および輝度低下が小さい)に優れる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0034】

以下、本発明を実施するための最良の形態について詳細に説明する。本明細書において「～」はその前後に記載される数値を、それぞれ最小値および最大値として含む範囲を示す。

【0035】

本発明は、一对の電極間に、発光層と、ホール輸送層と、電子輸送層とを有する有機電界発光素子であって、発光層中にホスト材料を少なくとも2種と、少なくとも1種の赤色燐光発光材料とを有することを特徴とする。同様の赤色発光三重項素子の特許として特開2002-305085号公報があり、該発明では発光層ホストとして、発光層に隣接したホール輸送層、電子輸送層やブロック層を形成するホール輸送材料、電子輸送材料やブロック材料を混合したものをを用い、発光層と隣接層との界面のエネルギー障壁を低減させることにより、キャリアーの移動を潤滑に行わせ素子寿命を向上させることを説明している。しかしながら、発光層ホストとして発光層の隣接層を構成する材料を用いると、例えば電極からのホール注入・輸送性、電子注入・輸送性の点で選択できる化合物が制限され、耐久性の観点で充分安定な化合物を選択できない。特開2002-305085号公報においては、混合ホストとしてBA1qが用いられているが、このような金属錯体は通電時に生成するラジカルカチオンの安定性が低く、耐久性が十分でない。

本発明は発光層に少なくとも2つのホスト材料を用い、ホール輸送層中のホール輸送材料のイオン化ポテンシャルが発光層中の2つのホスト材料のイオン化ポテンシャルより小さいことを特徴とし、それにより生じる層界面のエネルギー差を利用し、ホールの注入性をコントロールすることでラジカルカチオンの生成領域を調節したものであり、より好ましくは、より安定な非錯体ホストを用い、素子安定性の向上を謀ったものである。次に、本発明の発光層を構成する材料について説明する。

【0036】

燐光を発する材料を「燐光発光材料」と称する。本発明の発光素子は少なくとも1種のりん光発光材料を含む。本発明で用いるりん光発光材料は特に限定されないが、遷移金属錯体が好ましい。遷移金属錯体の中心金属は特に限定されないが、好ましくはイリジウム、白金、レニウム、またはルテニウムであり、より好ましくはイリジウムまたは白金であり、特に好ましくはイリジウムである。遷移金属錯体の中でも、オルトメタル化錯体が非常に好ましい。オルトメタル化錯体 (Orthometalated Complex) とは、山本明夫著, 「有機金属 基礎と応用」, 150頁および232頁, 裳華房社 (1982年) や H. Yersin 著, 「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compound」, 71~77頁および135~146頁, Springer-Verlag 社 (1987年) 等に記載されている化合物群の総称である。

【0037】

上記燐光材料は、20℃以上における燐光量子収率が70%以上であるのが好ましく、より好ましくは80%以上であり、さらに好ましくは85%以上である。

【0038】

本発明の燐光発光性化合物としては、例えば米国特許 (US) 6303238B1、US 6097147、国際公開 (WO) 00/57676、WO00/70655、WO01/08230、WO01/39234A2、WO01/41512A1、WO02/02714A2、WO02/15645A1、特開2001-247859、特願2000-33561、特願2001-189539、特願2001-248165、特願2001-33684、特願2001-239281、特願2001-219909、EP1211257、特開2002-226495、特開2002-234894、特開2001-247859、特開2001-298470、特開2002-173674、特開2002-203678、特開2002-203679等の特許文献や、Nature, 395巻, 151頁 (1998年)、Applied Physics Letters, 75巻, 4頁 (1999年)、Polymer Preprints, 41巻, 770頁 (2000年)、Journal of American Chemical Society, 123巻, 4304頁 (2001年)、Applied Physics Letters, 79巻, 2082頁 (1999年) 等の非特許文献に記載されている赤色燐光発光材料が好適に利用できる。好ましくは、US 6303238B1、WO01/41512A1、WO02/45466A1、特開2001-247859、特開2001-298470、特開2002-203678、特願2002-251871、特願2003-157006等記載の赤色燐光発光材料が挙げられる。

【0039】

赤色発光材料として好ましくは発光極大が550nm~700nm、より好ましくは560nm~680nm、特に好ましくは580nm~660nmである。また、赤色発光材料の最低励起三重項エネルギー準位が好ましくは67.6kJ/mol (40Kcal/mol) 以上243.0kJ/mol (58Kcal/mol) 以下、より好ましくは188.6kJ/mol (45Kcal/mol) 以上230.5kJ/mol (55Kcal/mol) 以下、特に好ましくは、188.6kJ/mol (45Kcal/mol) 以上217.9kJ/mol (52Kcal/mol) 以下である。

【0040】

本発明の燐光発光性化合物の発光層中の濃度は、1質量%以上50質量%以下であることが好ましく、1質量%以上30質量%以下であることがより好ましく、1質量%以上10質量%以下であることがさらに好ましい。

【0041】

次に発光層に含まれるホスト材料について説明する。ホスト材料として用いる化合物としてはホール及び電子を注入し得る化合物であり、その膜状態の最低励起三重項エネルギーが、赤色発光材料の最低励起三重項エネルギーと同等以上であればよい。

具体的には、窒素原子、酸素原子、硫黄原子を含有する5ないし7員のヘテロ環化合物（例えばピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、キノキサリン、キナゾリン、フタラジン、シンノリン、イソキノリン、プテリジン、アクリジン、フェナジン、ピロール、フラン、チオフェン、テトラゾール、ピラゾール、イミダゾール、チアゾール、オキサゾール、インダゾール、ベンズイミダゾール、ベンゾトリアゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、カルバゾール、インドール、プリン、トリアゾロピリダジン、トリアゾロピリミジン、テトラザインデン、ピラリジン、ピロロピリジン、チアジアゾロピリジン、ジベンズアゼピン、トリベンズアゼピン等）、ポリアリーレン化合物、フルオレン化合物、シクロペンタジエン化合物、縮合芳香族炭素環化合物（好ましくは2ないし5環、より好ましくは2ないし4環、特に好ましくは2ないし3環であり、例えば、ナフタレン、フェナントレン、アントラセン等を持つ化合物が挙げられる。）、トリアリールアミン化合物、含窒素ヘテロ環化合物を配位子として有する金属錯体（このましくは特開2000-302754号公報記載の一般式（I）で表される化合物などが挙げられる。

【0042】

ホスト材料としてより好ましくは、非金属錯体化合物であり、トリアリールアミン化合物、カルバゾール化合物、インドール化合物、ピロール化合物、ピラゾール化合物、チオフェン化合物、ポリアリーレン化合物、縮合芳香族炭素環化合物、ヘテロ原子を2つ以上含有するヘテロ環骨格を有する化合物などである。

本発明で用いるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物は、炭素原子、水素原子以外の原子を、環を形成する基本骨格内に2つ以上有する化合物であり、単環または縮環であっても良い。ヘテロ環骨格としては、好ましくはN、O、S原子から選ばれる原子を2つ以上有するものであり、更に好ましくはヘテロ原子のうち少なくとも一つがN原子である芳香族ヘテロ環であり、特に好ましくはN原子を骨格内に2つ以上有する芳香族ヘテロ環である。また、ヘテロ原子は縮合位置にあっても、非縮合位置にあってもよい。ヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格としては、例えばピラゾール、イミダゾール、ピラジン、ピリミジン、インダゾール、ベンズイミダゾール、プリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、フェナントロリン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、ピラゾロイミダゾール、ピラゾロトリアゾール、ピラゾロピリミジン、ピラゾロトリアジン、イミダゾイミダゾール、イミダゾピリダジン、イミダゾピリジン、イミダゾピラジン、トリアゾロピリジン、トリアゾロピリダジン、トリアゾロピリミジン、ベンゾイミダゾール、ナフトイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ナフトオキサゾール、ベンゾチアゾール、ナフトチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、トリアジンなどが挙げられ、好ましくは一つの環に2つ以上のヘテロ原子を有する5ないし6員環であり、5員の場合はヘテロ環同士が縮合した環を有するものが更に好ましい。例えばイミダゾピリダジン、イミダゾピリジン、イミダゾピラジン、ベンズイミダゾール、トリアゾロピリダジン、トリアゾロピリミジン、プリン、ナフトイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ナフトオキサゾール、ベンゾチアゾール、ナフトチアゾール、トリアジンであり、より好ましくはイミダゾピリジン、イミダゾピラジン、ベンゾイミダゾール、トリアゾロピリダジン、トリアゾロピリミジン、プリン、ナフトイミダゾール、トリアジンであり、更に好ましくはイミダゾピリジン、ベンゾイミダゾール、トリアゾロピリダジン、トリアゾロピリミジン、プリン、ナフトイミダゾール、トリアジンであり、特に好ましくはイミダゾピリジン、トリアゾロピリダジン、トリアゾロピリミジン、プリン、トリアジンである。

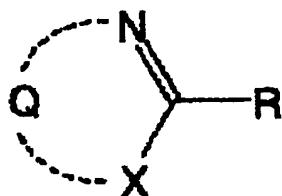
【0043】

上記ホスト材料として特に好ましくはトリアリールアミン化合物、カルバゾール化合物、特開2002-305084号記載のインドール化合物、ピロール化合物、ピラゾール化合物、特開2003-27048号記載のポリアリーレン化合物、特開2001-192651号記載の縮合芳香族炭素環化合物、下記一般式（I）で表されるヘテロ原子を2つ以上含有する縮合環からなる化合物などである。

【0044】

【化14】

一般式 (I)



【0045】

(式中、Rは水素原子または置換基を表す。Xは-O-、-S-、=N-または=N-Ra (Raは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。))を表す。QはNおよびXと結合して縮合ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。)

【0046】

一般式 (I) 中、Rは水素原子または置換基を表す。XはO、S、NまたはN-Ra (Raは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。))を表す。QはNおよびXと結合して縮合ヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。また、RとX、RとQは可能な場合には結合して環を形成しても良い。

【0047】

前記Rで表される置換基として、例えばアルキル基 (好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~10であり、例えばメチル、エチル、iso-プロピル、tert-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アルケニル基 (好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基 (好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、アリール基 (好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル、p-メチルフェニル、ナフチルなどが挙げられる。)、アミノ基 (好ましくは炭素数0~30、より好ましくは炭素数0~24、特に好ましくは炭素数0~20であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノ、ジナフチルアミノなどが挙げられ、特に好ましくはジフェニルアミノ、ジトリルアミノ、ジナフチルアミノ基である。)、アルコキシ基 (好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~10であり、例えばメトキシ、エトキシ、プロトキシ、2-エチルヘキシロキシなどが挙げられる。)、アリールオキシ基 (好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェノキシ、1-ナフトキシ、2-ナフトキシなどが挙げられる。)、ヘテロ環オキシ基 (好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数3~16、特に好ましくは炭素数4~12であり、例えばピリジノオキシ、ピリミジノオキシ、ピリダジノオキシ、ベンズイミダゾリルオキシなどが挙げられる。)、シリルオキシ基 (好ましくは炭素数3~40、より好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは炭素数3~20であり、例えばトリメチルシリルオキシ、tert-ブチルジメチルシリルオキシ、トリフェニルシリルオキシなどが挙げられる。)、アシル基 (好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル

、ピバロイルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。)、アリアルオキシカルボニル基(好ましくは炭素数7~30、より好ましくは炭素数7~20、特に好ましくは炭素数7~12であり、例えばフェノキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシルオキシ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。)、アシルアミノ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、アリアルオキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数7~30、より好ましくは炭素数7~20、特に好ましくは炭素数7~12であり、例えばフェノキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、スルホニルアミノ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基(好ましくは炭素数0~30、より好ましくは炭素数0~20、特に好ましくは炭素数0~12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、アルキルチオ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。)、アリアルチオ基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。)、ヘテロ環チオ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばピリジルチオ、2-ベンズイミダゾリルチオ、2-ベンズオキサゾリルチオ、2-ベンズチアゾリルチオなどが挙げられる。)、スルホニル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。)、スルフィニル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。)、ウレイド基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。)、リン酸アミド基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシ基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、カルバゾリル、アゼピニルなどが挙げられる。)、シリル基(好ましくは炭素数3~40、より好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは炭素数3~24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。))などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよい。また置換基が二つ以上ある場合は、同じでも異なってもよい。また、可能な場合には連結して環を形成してもよい。

【0048】

Rで表される置換基として好ましくは、脂肪族炭化水素基、アリアル基およびヘテロ環基であり、より好ましくはアリアル基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアリー

ル基、5または6員の芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくはアリール基、N、S、O原子の少なくとも一つを含む5または6員の芳香族ヘテロ環基であり、最も好ましくはアリール基である。

【0049】

XはO、S、NまたはN-Raを表す。Raは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Raで表される脂肪族炭化水素基は直鎖、分岐または環状のアルキル基（好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~8であり、例えばメチル、エチル、iso-プロピル、tert-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。）、アルケニル基（好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニル等が挙げられる。）、アルキニル基（好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニル等が挙げられる。）であり、より好ましくはアルキル基である。

【0050】

Raで表されるアリール基は、単環または縮環のアリール基であり、好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、更に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル、2-メチルフェニル、3-メチルフェニル、4-メチルフェニル、2-メトキシフェニル、3-トリフルオロメチルフェニル、ペンタフルオロフェニル、1-ナフチル、2-ナフチル等が挙げられる。Raで表されるヘテロ環基は、単環または縮環のヘテロ環基（好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、更に好ましくは炭素数2~10のヘテロ環基）であり、好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つを含む芳香族ヘテロ環基である。Raで表されるヘテロ環基の具体例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフェン、セレンフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、ピリミジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、カルバゾール、アゼピン等が挙げられ、好ましくは、フラン、チオフェン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、キノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリンであり、更に好ましくはキノリンである。

【0051】

Raで表される脂肪族炭化水素基、アリール基、ヘテロ環基は置換基を有していてもよく、置換基としては一般式(I)におけるRで表される基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。Raとして好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくはアリール基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアリール基である。

【0052】

Xとして好ましくはO、N、N-Raであり、より好ましくはN、N-Raであり、特に好ましくはN、N-Ar（Arはアリール基（好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、更に好ましくは炭素数6~12のアリール基）、芳香族ヘテロ環基（好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、更に好ましくは炭素数2~10の芳香族ヘテロ環基）であり、好ましくはアリール基である。）である。

【0053】

QはNおよびXと結合して縮合ヘテロ環を形成するに必要な原子群をあらわす。Qで形成される縮合ヘテロ環として好ましくは芳香族縮合ヘテロ環であり、より好ましくはNおよびXとが結合する環が5~8員の芳香族ヘテロ環であり、更に好ましくはNおよびXと

が結合する環が5または6員環の芳香族ヘテロ環である。NおよびXとが結合するヘテロ環の具体例としては、イミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、セレナゾール環、テルラゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、オキサトリアゾール環、チアトリアゾール環、ピリミジン環、ピリダジン環、ピラジン環、トリアジン環、テトラジン環等が挙げられ、好ましくはイミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、トリアゾール環、トリアジン環であり、より好ましくはイミダゾール環、オキサゾール環、トリアゾール環、トリアジン環であり、更に好ましくはイミダゾール環、トリアゾール環、トリアジン環である。NおよびXとが結合するヘテロ環は更に他の環と縮合して環を形成する。また、前記縮合ヘテロ環は置換基を有していてもよい。

前記置換基としては例えばRで表される基として挙げたものが適用できる。Qの置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族ヘテロ環基である。

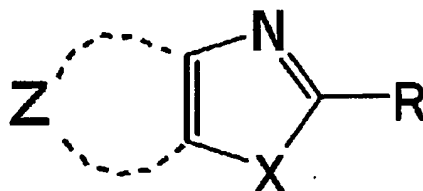
【0054】

一般式(I)で表される化合物の好ましい形態は、一般式(H-I)、一般式(H-II)、一般式(H-V)、一般式(H-VI)で表される化合物である。

【0055】

【化15】

一般式(H-I)



【0056】

一般式(H-I)中、Rは一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Xは-O-、-S-または=N-Raを表す。Raは一般式(I)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Xとして好ましくは-O-、=N-Raであり、より好ましくは=N-Raであり、特に好ましくは=N-Ar(Arはアリール基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、更に好ましくは炭素数6~12のアリール基)、芳香族ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、更に好ましくは炭素数2~10の芳香族ヘテロ環基)であり、好ましくはアリール基である。)である。Zは芳香族環を形成するに必要な原子群を表す。Zで形成される芳香族環は芳香族炭化水素環、芳香族ヘテロ環のいずれでもよく、具体例としては、例えばベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン

環、トリアジン環、ピロール環、フラン環、チオフェン環、セレンフェン環、テルロフェン環、イミダゾール環、チアゾール環、セリナゾール環、テルラゾール環、チアジアゾール環、オキサジアゾール環、ピラゾール環などが挙げられ、好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環であり、より好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環であり、更に好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピリミジン環であり、特に好ましくはピリジン環である。Zで形成される芳香族環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有していてもよい。置換基としては例えば一般式(I)におけるRで表される基として挙げたものが適用でき、Zで形成される芳香族環の置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族ヘテロ環基である。

【0057】

一般式(H-I)で表される化合物のさらに好ましい形態は一般式(H-III)、一般式(H-IV)、一般式(H-VII)である。

一般式(H-III)は、特開2002-319491号公報記載の一般式(B-III)と同義であり、好ましい範囲も同様であり、特開2002-319491号公報記載の一般式(B-III)~(B-X)で表される化合物である。

一般式(H-IV)は、特開2002-100476号公報記載の一般式(A)と同義であり、好ましい範囲も同様である。

一般式(H-VII)は、特開2002-338579号公報記載の一般式(I)と同義であり、好ましい範囲も同様である。

【0058】

一般式(H-III)は、特開2002-319491号公報記載の一般式(C-III)と同義であり、好ましい範囲も同様である。

一般式(H-V)、一般式(H-VI)は、特開2002-356489号公報記載の一般式(I)、一般式(II)と同義であり、好ましい範囲も同様である。

【0059】

一般式(II)で表される含窒素ヘテロ環化合物を配位子として有する金属錯体は特開2000-302754号公報記載の一般式(I)と同義であり、好ましい範囲も同様である。

【0060】

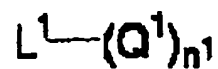
本発明の有機電界発光素子は好ましくは発光層中のホスト材料の少なくとも一方が上記で説明したヘテロ原子を2つ以上含有するヘテロ環骨格を有する化合物である。

その他、特に好ましいホストとしては、特開2002-100476号公報記載の一般式(I)で表され、より好ましくは一般式(A-1)、一般式(B-1)、一般式(C-1)、一般式(D-1)で表される化合物や下記具体例などが挙げられる。

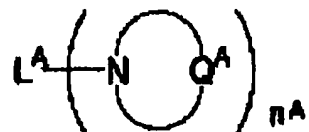
【0061】

【化16】

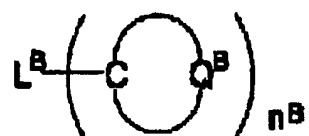
一般式 (1)



一般式 (A-1)



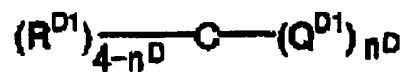
一般式 (B-1)



一般式 (C-1)

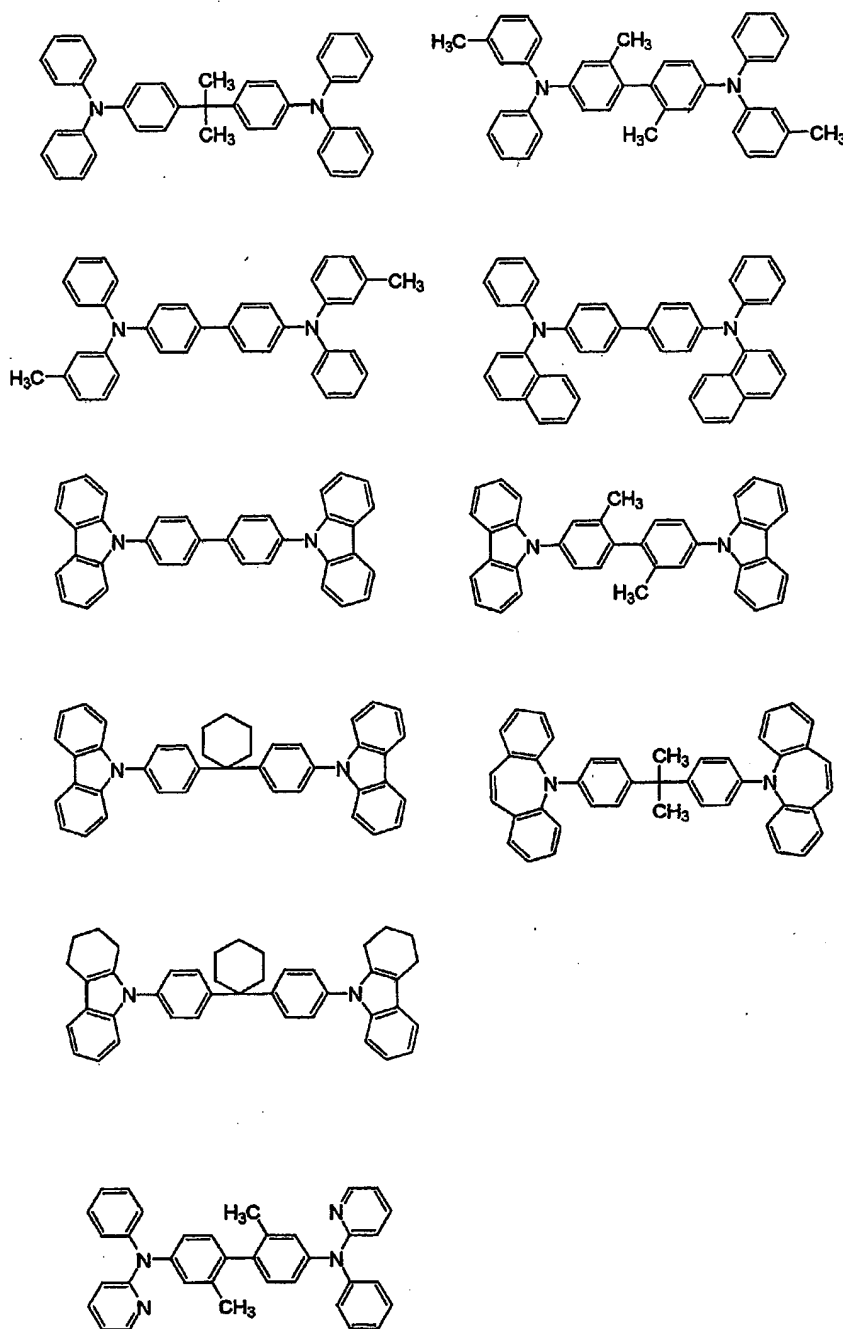


一般式 (D-1)



【0062】

【化17】



【0063】

本発明の少なくとも一つのホスト材料の発光層中の濃度は、それぞれ1質量%以上99質量%以下であることが好ましく、5質量%以上90質量%以下であることがより好ましく、10質量%以上80質量%以下であることがさらに好ましく、残りを燐光性発光材料と他のホスト材料がしめる。

【0064】

発光層中のすべてのホスト材料は好ましくはすべて非金属錯体化合物であり、より好ましくは、少なくとも一つのホスト材料がヘテロ環骨格を有する化合物であり、更に好ましくは、少なくとも一つのホスト材料がヘテロ原子を2つ以上含有する化合物であり、特に好ましくは、少なくとも一つのホスト材料が2つ以上のヘテロ原子を一つの環に有するへ

テロ環縮環化合物である。

【0065】

本発明の電子注入・輸送層を構成する材料について説明する。

本発明の電子注入層、電子輸送層の材料は陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれかを有しているものであれば良い。電子輸送層の材料としては、電子吸引性基（このましくはHammettの σ_p 値が0.2以上の電子吸引性基であり、更に好ましくはアリール基、芳香族ヘテロ環基、シアノ基、カルボニル基、チオカルボニル基、オキシカルボニル基、アシルアミノ基、カルバモイル基、スルファモイル基、スルホニル基、イミノ基、ハロゲン原子などが挙げられる。）の置換した芳香族炭素環化合物（好ましくはベンゼン、ナフタレン、アントラセン、フェナントラセン、テトラセン、ピレン、ペンタセン、ペリレン、コロネン、クリセン、ピセン、ペリサイクレン、アセナフテン、フルオランテンなどが挙げられる。）、含窒素芳香族ヘテロ環（5ないし6員の芳香族含窒素ヘテロ環が挙げられ、ヘテロ原子として更に酸素原子、窒素原子、硫黄原子、珪素原子を含んでも良く、2ないし10環の縮合環を形成してもよい。例えばピリジン構造、ピラジン構造、ピリミジン構造、ピリダジン構造、ピロール構造、ピラゾール構造、イミダゾール構造、オキサゾール構造、チアゾール構造、トリアゾール構造やこれらの組合せが挙げられる。）、金属錯体などが挙げられる。

その具体例としてはトリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、イミダゾール、フルオレノン、アントラキノジメタン、アントロン、ジフェニルキノン、チオピランジオキシド、カルボジイミド、フルオレニリデンメタン、ジスチリルピラジン、ナフタレン、ペリレン等の芳香族アトラカルボン酸無水物、フタロシアニン、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体、有機シラン化合物及びその誘導体等が挙げられる。

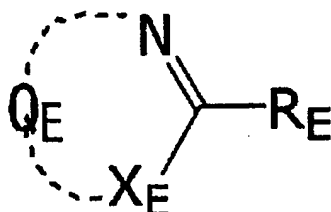
【0066】

電子輸送層に含有される材料として好ましくは特開2002-319491号公報記載の一般式(I)で表される化合物（ここでは、一般式(I)で表される化合物を一般式(E1)で表される化合物として表示する）、特開2002-100476号公報記載の一般式(A)で表される化合物（ここでは、一般式(A)で表される化合物を一般式(E-I V)で表される化合物として表示する）である。

【0067】

【化18】

一般式 (E1)



【0068】

（式中、 R_E は水素原子または置換基を表す。 X_E は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $=N-$ または $=N-R_a$ （ R_a は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。）を表す。 Q_E はNおよびXと結合してヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。それぞれの基の説明は特開2002-319491号公報記載の一般式(I)と同様である。

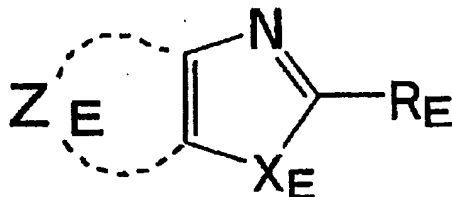
【0069】

一般式 (E1) で表される化合物の好ましい形態は、下記一般式 (E2) または一般式 (E-III) である。

【0070】

【化19】

一般式 (E2)



【0071】

式中、 R_E 、 X_E は一般式 (E1) におけるそれらと同義である。 Z_E は芳香族環を形成するに必要な原子群を表し、特開 2002-319491 号公報記載の一般式 (II) 記載の Z と同様である。

【0072】

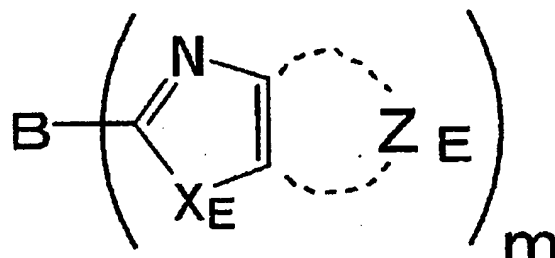
一般式 (E2) で表される化合物のさらに好ましい形態は一般式 (E-III) であり、式中、 R_E 、 X_E 、 B は特開 2002-319491 号公報記載の一般式 (B-III) 記載のそれと同義であり、好ましい範囲も同様であり、特開 2002-319491 号公報記載の一般式 (B-III) ~ (B-X) で表される化合物である。

前記一般式 (E-III) および一般式 (H-III) における B は連結基を表すが、 B で表される連結基として好ましくは、 C 、 N 、 O 、 S 、 Si 、 Ge などで形成される連結基である。 B として好ましくは炭素原子、アルキレン、アルケニレン、アルキニレン、アリーレン、多価の芳香環（炭素原子のみからなる芳香環であってもヘテロ環であってもよく、ヘテロ環として好ましくアゾール、チオフェン、フラン環から形成される芳香族ヘテロ環などである。）および N とこれらの組み合わせから成る基であり、更に好ましくはアリーレン、三価の芳香環および N とこれらの組み合わせから成る基であり、更に好ましくは三価の芳香環および N とこれらの組み合わせから成る基であり、特に好ましくは、1, 3, 5-ベンゼントリイル基である。

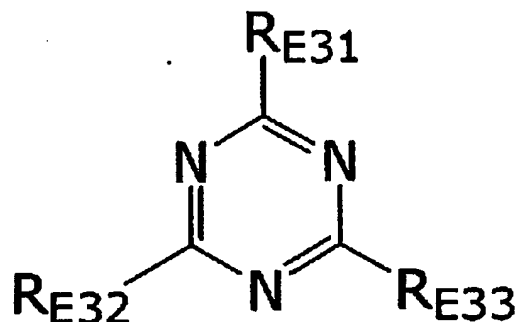
【0073】

【化20】

一般式 (E-I I)



一般式 (E-III)



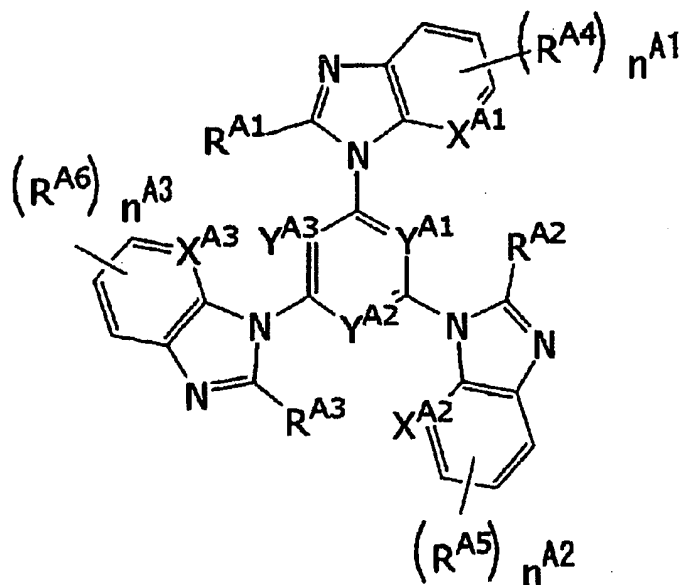
【0074】

式中、 R_{E31} 、 R_{E32} および R_{E33} は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表し、特開 2002-319491 号公報記載の一般式 (C-I I) で表される化合物と同義であり、好ましい範囲も同様である。本発明で用いる一般式 (E I) で表される化合物の具体例は、特開 2002-319491 号公報記載の具体例 (化合物番号 205~306、367~381) を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

一般式 (E-IV)

【0075】

【化21】



【0076】

式中、 R^{A1} 、 R^{A2} および R^{A3} はそれぞれ水素原子または脂肪族炭化水素基を表す。 R^{A4} 、 R^{A5} および R^{A6} は、それぞれ置換基を表す。 n^{A1} 、 n^{A2} および n^{A3} は、それぞれ0～3の整数を表す。 X^{A1} 、 X^{A2} および X^{A3} は、それぞれ窒素原子または $C-R^X$ (R^X は水素原子または置換基を表す。)を表す。 Y^{A1} 、 Y^{A2} および Y^{A3} は、それぞれ窒素原子または $C-R^{YX}$ (R^{YX} は水素原子または置換基を表す。)を表し、特開2002-100476号公報記載の一般式(A)で表される化合物と同義であり、好ましい範囲も同様である。

【0077】

次に、本発明の発光素子の構成作成方法について説明する。

本発明の発光素子の有機層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法、インクジェット法、印刷法などの方法が用いられ、特性面、製造面で抵抗加熱蒸着、コーティング法、転写法が好ましい。

【0078】

本発明の発光素子は陽極、陰極の一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機層を形成した素子であり、発光層のほか正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層を有し、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の適宜材料を用いることができる。

【0079】

陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が4 eV以上の材料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ(ITO)等の導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点からITOが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm～1 μmであり、更に好ましくは100 nm～500 nmである。

【0080】

陽極は通常、ソーダ石灰ガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダ石灰ガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施したものを使用することが好ましい。基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常0.2mm以上、好ましくは0.7mm以上のものを用いる。陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法（ゾルゲル法など）、酸化インジウムスズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げて、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理、プラズマ処理などが効果的である。

【0081】

陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの負極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属ハロゲン化物、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属（例えばLi、Na、K等）及びそのフッ化物または酸化物、アルカリ土類金属（例えばMg、Ca等）及びそのフッ化物または酸化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属、インジウム、イッテリビウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数が4 eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属等である。陰極は、上記化合物及び混合物の単層構造だけでなく、上記化合物及び混合物を含む積層構造を取ることもできる。例えば、アルミニウム/フッ化リチウム、アルミニウム/酸化リチウムの積層構造が好ましい。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10nm～5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50nm～1μmであり、更に好ましくは100nm～1μmである。

【0082】

陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することもできる。さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させてもよい。陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百Ω/□以下が好ましい。

【0083】

発光層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm～5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm～1μmであり、更に好ましくは10nm～500nmである。

【0084】

発光層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法、LB法、転写法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加熱蒸着、コーティング法である。

【0085】

正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置

換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリディン系化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、有機シラン誘導体、カーボン膜、本発明の化合物等が挙げられる。正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm~1μmであり、更に好ましくは10nm~500nmである。正孔注入層、正孔輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

【0086】

正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記正孔注入輸送材料を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法(スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など)、インクジェット法、印刷法、転写法が用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

【0087】

電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm~1μmであり、更に好ましくは10nm~500nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

【0088】

電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記電子注入輸送材料を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法(スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など)、インクジェット法、印刷法、転写法などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、正孔注入輸送層の場合に例示したものが適用できる。

【0089】

保護層の材料としては水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであればよい。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO₂、Al₂O₃、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂等の金属酸化物、MgF₂、LiF、AlF₃、CaF₂等の金属フッ化物、SiO_xN_y、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のコモノマーとを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質等が挙げられる。

【0090】

保護層の形成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE(分子線エピタキシー)法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法(高周波励起イオンプレーティング法)、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法、

印刷法、転写法を適用できる。

【0091】

本発明の有機電界発光素子は、表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア、光通信等の分野に好適に使用できる。

【0092】

【実施例】

以下に本発明の実施例について説明するが、本発明の実施の態様はこれらに限定されない。

【0093】

(比較例)

発光層に2種以上のホスト材料と赤色燐光発光化合物を含有する素子として、特開2002-313584号公報、特開2002-313585号公報に、発光層ホストとしてBA1qと α -NPD(N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(α -ナフチル)-ベンジン)を混合し、発光材料としてPtOEP($T_1=45\text{Kcal/mol}$)を用いた素子が開示されている。そこで、以下の素子を作製した。洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、銅フタロシアニンを10nm蒸着しその上に α -NPDを40nm蒸着しホール輸送層を形成した。この上に、第一ホストとしてNPDを、第二ホストとしてBA1qを、発光材料としてPtOEPをそれぞれ0.4nm/秒、0.1nm/秒、0.03nm/秒で膜厚が20nmになるように共蒸着し発光層を形成した。その上にBA1qを10nm、さらにAlqを40nm蒸着した。有機薄膜上にパターンニングしたマスク(発光面積が2mm×2mmとなるマスク)を設置し、蒸着装置内でフッ化リチウムを5nm蒸着した後、アルミニウムを500nmを蒸着し、引き続き素子を封止しEL素子を作製した(素子No-101、発光波長:648nm)。上記と同様の操作で発光材料をI-1に変更し、EL素子を作成した(素子No-102、発光波長:620nm)。

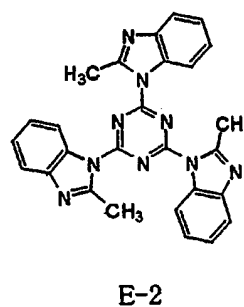
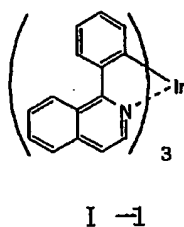
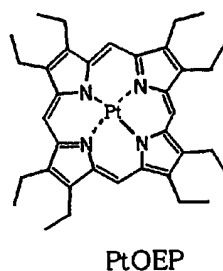
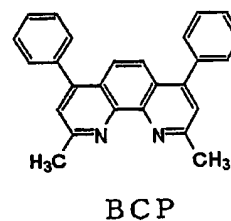
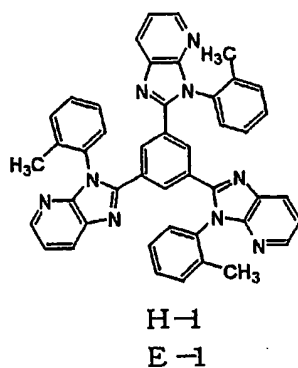
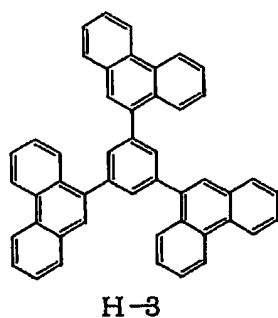
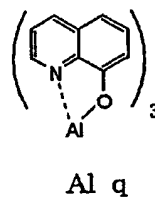
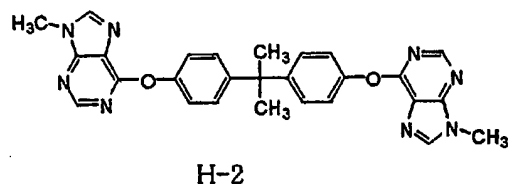
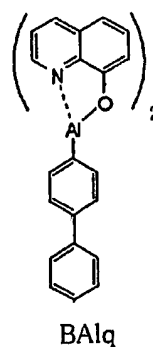
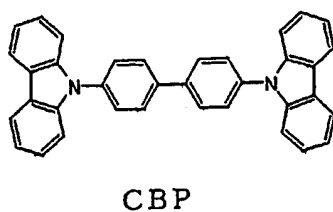
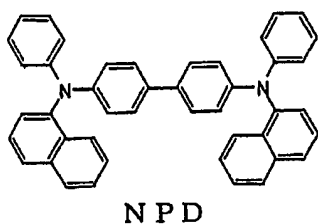
【実施例1】

【0094】

上記比較例と同様の操作で α -NPDを蒸着した後、表1記載の第一ホスト、第二ホストおよび発光材料(I-1の $T_1:49\text{Kcal/mol}$)をそれぞれ0.4nm/秒、0.1nm/秒、0.03nm/秒で膜厚が20nmになるように共蒸着し発光層を形成した。その上に表1記載の電子輸送材料を50nm蒸着後、上記と同様に陰極を蒸着、封止し、EL素子を作成した(素子103~107、素子103の発光波長:620nm)。

【0095】

【化22】



【0096】

次に以下のようにして各素子を評価した。

有機薄膜上に東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400を用いて、直流定電流をEL素子に印加し、比較例および本発明の素子を発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、発光波長を浜松ホトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定し発光効率を求めた。その結果を表1に示す。

【0097】

【表 1】

素子 Nos.	第一ホスト I _p (eV)	第二ホスト I _p (eV)	発光 材料	電子 輸送層	外部量子 効率	備考
101	NPD(5.4)	BAIq (5.8)	PtOEP	BAIq/Alq	4.1%	比較例
102	NPD(5.4)	BAIq (5.8)	I-1	BAIq/Alq	5.2%	比較例
103	CBP(6.0)	BAIq (5.8)	I-1	BAIq/Alq	6.5%	本発明
104	CBP(6.0)	BCP(>6.3)	I-1	BCP/Alq	7.1%	本発明
105	CBP(6.0)	H-1(>6.3)	I-1	E-1	9.3%	本発明
106	CBP(6.0)	H-2(5.8)	I-1	E-1	7.8%	本発明
107	H-3(5.9)	H-1(>6.3)	I-1	E-2	8.2%	本発明

【0098】

ホール輸送材料と共通のホストを含有する素子101、素子102に比較し、I_pが大きいホストを用いた本発明の素子（素子103～107）は良好な発光効率および耐久性を示す。さらに発光層中のホストがすべて非錯体とした素子（素子104～107）はさらに良好な発光効率を示し、特に2つ以上のヘテロ原子を1つの環に有するヘテロ環ホストを用いた素子（105～107）はさらに優れた発光効率を示す。また、本発明の発光素子は耐久性にも優れる。このように、本発明の素子は発光効率に優れ、特に青色純度に優れる発光、耐久性、エージング特性にも優れる三重項発光素子を実現する。さらに、本発明の素子は特開2002-313584号公報、特開2002-313585号公報の素子のように蒸着操作が煩雑ではなく、素子作製適性に優れる。

【書類名】要約書

【要約】 発光特性、及び耐久性が良好であり、さらに製造適性に優れた有機電界発光素子を提供すること。

【課題】 一对の電極間に、発光層、該発光層の隣接層にホール輸送層及び電子輸送層を有する有機電界発光素子において、前記発光層中に少なくとも2つのホスト材料と、少なくとも1つの赤色燐光発光材料を含有し、該ホール輸送層中のホール輸送材料のイオン化ポテンシャルが前記発光層中の2つの該ホスト材料のイオン化ポテンシャルより小さい有機電界発光素子。

【選択図】

選択図なし

特願2003-331515

出願人履歴情報

識別番号

[000005201]

1. 変更年月日

1990年 8月14日

[変更理由]

新規登録

住 所

神奈川県南足柄市中沼210番地

氏 名

富士写真フイルム株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☒ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.